

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-118601

(43)Date of publication of application : 27.04.2001

(51)Int.Cl.

H01M 10/40

(21)Application number : 11-295380

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 18.10.1999

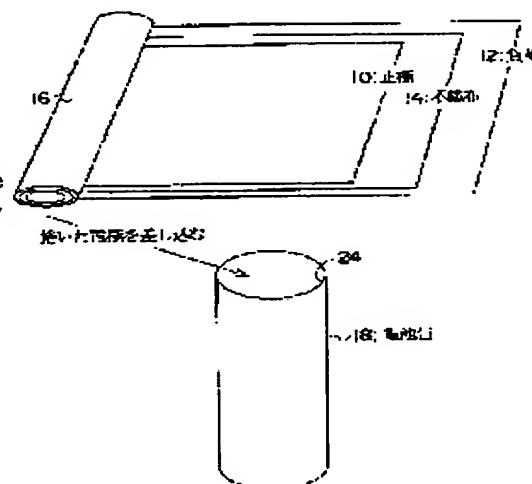
(72)Inventor : SHIBATA YASUFUMI  
HOJJIYO YASUTOSHI  
NOGIWA TAKESHI  
AWANO HIROMOTO

## (54) MANUFACTURING METHOD OF LITHIUM ION SECONDARY BATTERY

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To simplify a manufacturing process, and provide the manufacturing method of lithium ion secondary battery that has no risk to have a short circuit between two electrodes.

**SOLUTION:** Between a positive electrode 10 and a negative electrode 12, a non-woven fabric 14 is intervened, and then it is wound up to make an electrode 16, and the electrode 16 is accommodated into a battery can 18. The battery can 18 at a standing position is put into a vessel of centrifugal separator, and centrifuged after filling the separator with a gel electrolyte. By this way, the gel electrolyte invades into an aperture 24 of the battery can 18, and the gel electrolyte penetrates into the non-woven fabric 14 that composes the electrode 16 in the battery can 18. By this way, the lithium ion secondary battery can be formed.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 20.05.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than withdrawal the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application] 29.01.2004

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開 2 0 0 1 - 1 1 8 6 0 1

(P 2 0 0 1 - 1 1 8 6 0 1 A)

(43) 公開日 平成13年4月27日 (2001. 4. 27)

(51) Int. Cl. 7

H 0 1 M 10/40

識別記号

F I

H 0 1 M 10/40

テーマコード (参考)

B 5H029

審査請求 未請求 請求項の数 2

O L

(全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平11-295380  
(22) 出願日 平成11年10月18日 (1999. 10. 18)

(71) 出願人 000003207  
トヨタ自動車株式会社  
愛知県豊田市トヨタ町1番地  
(72) 発明者 柴田 靖文  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
(72) 発明者 方城 康利  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
(74) 代理人 100075258  
弁理士 吉田 研二 (外2名)

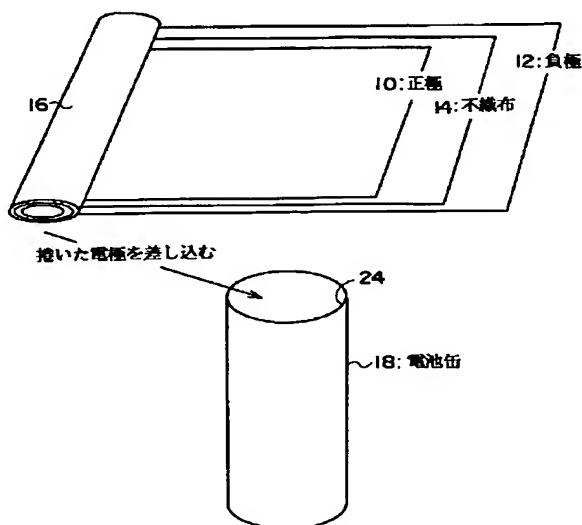
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 リチウムイオン 2 次電池の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 製造工程を簡略化でき、電極間の短絡のおそれのないリチウムイオン 2 次電池の製造方法を提供する。

【解決手段】 正極 1 0 と負極 1 2 との間に不織布 1 4 を介在させ、これを巻き取って電極 1 6 とし、この電極 1 6 を電池缶 1 8 に収容する。この電池缶 1 8 を立てた状態で遠心分離器の容器に収容し、この容器をゲル電解質で満たした後遠心分離にかける。これにより、電池缶 1 8 の開口 2 4 からゲル電解質が侵入し、電池缶 1 8 内の電極 1 6 を構成する不織布 1 4 にゲル電解質が浸透する。これにより、リチウムイオン 2 次電池を形成することができる。



**【特許請求の範囲】**

【請求項 1】 正負極間に不織布を介在させて電極を形成し、前記不織布にゲル電解質を遠心力を用いて含浸させることを特徴とするリチウムイオン 2 次電池の製造方法。

【請求項 2】 請求項 1 記載のリチウムイオン 2 次電池の製造方法において、前記ゲル電解質としては、粘度が異なる 2 種以上のゲル電解質を用い、遠心力を電極の積層方向に対して垂直にかけるとを特徴とするリチウムイオン 2 次電池の製造方法。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

【発明の属する技術分野】 本発明は、リチウムイオン 2 次電池の製造方法の改良に関する。

**【0002】**

【従来の技術】 リチウムイオン 2 次電池は、正極、負極間に電解質を介在させることによって構成される。このため、正極、負極間に電解液が含浸されたセパレータを配置したり、正極、負極間に固体ポリマー電解質層を介在させたもの等が提案されている。

【0003】 例えば、特開平 9-22731 号公報には、正極と負極の間に固体ポリマー電解質層を介在させて積層物とした後、この積層物に遠心力を加えながら非水電解液を注液することにより積層物に非水電解液を含浸させる方法が開示されている。

**【0004】**

【発明が解決しようとする課題】 しかし、上記従来のリチウムイオン 2 次電池の製造方法においては、正極と負極との間に固体ポリマーを介在させるために、電極上に固体ポリマーの膜を形成する工程が必要であり、このために、電極上へのポリマー溶液の塗布及び溶媒の除去工程が必要となって、製造工程が複雑となるという問題があった。

【0005】 また、正極、負極間に存在するのは、固体ポリマーの膜であるので、機械的なこすれ等により穴が空きやすく、電極間に短絡を生じさせやすいという問題もあった。

【0006】 本発明は、上記従来の課題に鑑みなされたものであり、その目的は、製造工程を簡略化でき、電極間の短絡のおそれのないリチウムイオン 2 次電池の製造方法を提供することにある。

**【0007】**

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するために、本発明は、リチウムイオン 2 次電池の製造方法であって、正負極間に不織布を介在させて電極を形成し、この不織布にゲル電解質を遠心力を用いて含浸させることを特徴とする。

【0008】 また、上記リチウムイオン 2 次電池の製造方法において、ゲル電解質としては、粘度が異なる 2 種以上のゲル電解質を用い、遠心力を電極の積層方向に

して垂直にかけるとを特徴とする。

**【0009】**

【発明の実施の形態】 以下、本発明の実施の形態（以下実施形態という）を、図面に従って説明する。

【0010】 実施形態 1. 図 1 には、本発明に係るリチウムイオン 2 次電池の製造方法の実施形態 1 の説明図が示される。図 1 において、長方形等細長い形状の正極 10 及び負極 12 の間に、同形状の不織布 14 を介在させ、これを長軸方向に捲き取ることにより、リチウムイオン 2 次電池の電極 16 を形成する。この場合、正極 10 と負極 12 との間の短絡を防止するために、内側に捲かれる正極 10 の方が負極 12 よりも小さな形状とされ、ここでは不織布 14 は、正極 10 及び負極 12 の中間の大きさとなっている。しかし、他の実施形態では、不織布 14 は負極 12 よりも大きな形状でもよい。

【0011】 以上のようにして正極 10、不織布 14、負極 12 の積層物を捲回して形成された電極 16 は、電池缶 18 に挿入される。図 1 に示されるように、電池缶 18 は円筒形状であり、本実施形態に係るリチウムイオン 2 次電池の製造方法では、円筒形状のリチウムイオン 2 次電池が製造される。

【0012】 上述した不織布 14 は、従来のリチウムイオン 2 次電池において、正極 10 と負極 12 との間に介在されたセパレータの代わりに使用されるものであり、その厚さとしては 50～300 μm 程度のものが使用される。

【0013】 以上のようにして構成した電極 16 が挿入された電池缶 18 は、図 2 に示されるように、遠心分離器の容器 20 中に立てて置かれる。また、電池缶 18 が収容された遠心分離器の容器 20 中には、ゲル電解質 22 が満たされている。このような容器 20 が取り付けられた遠心分離器を回転させると、遠心力は電極 16 の積層方向に対して垂直方向（電池缶 18 の軸方向）、すなわち図 2 に示された矢印方向に作用する。このため、容器 20 内に満たされたゲル電解質 22 は、電池缶 18 の開口 24 から電池缶 18 内に侵入し、電極 16 の不織布 14 中に浸透していく。

【0014】 上記ゲル電解質 22 は、ポリマーと電解液成分とを混合しゲル化したものである。このポリマーとしては、PVDF、PVDF/HFP＝80～95 wt %/5～20 wt %の共重合体、PVDF/CTFE＝80～95 wt %/5～20 wt %の共重合体などを用いる。また、電解液成分は、塩と溶媒との混合物であり、塩としては LiPF<sub>6</sub>、LiBF<sub>4</sub>、LiClO<sub>4</sub>、LiCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>など、溶媒としては EC、DEC、DMC、DME、PCなどをそれぞれ単体あるいは複合して用いる。

【0015】 また、ゲル電解質 22 を不織布 14 に含浸するための遠心分離器の回転速度は、使用するゲル電解質 22 の粘度によって調整する必要がある。このゲル電

解質22の粘度と不織布14への含浸に必要な遠心分離器の回転速度との関係が図3に示される。図3の斜線部に示されるように、回転速度としては500～3000rpmの範囲が好適である。この場合、500rpm未満の回転速度では、ゲル電解質22が十分に不織布14に浸透せず、また3000rpm以上となると電極16を構成する正極10と負極12とが剥離してしまう。

【0016】なお、容器20の中に電池缶18を立てた状態で遠心分離をかける場合には、遠心分離器の回転速度としては500～2000rpmとし、遠心分離の時間としては5～10分とするのが好適であった。この場合、使用した遠心分離器は、回転直径が250mmであった。この回転直径が異なれば、上記遠心分離器の回転条件も適宜調整する必要がある。

【0017】また、図4には、容器20の中に電池缶18を寝かせた状態で入れた場合が示される。この場合、予め電池缶18を入れた容器20内を真空にした状態で遠心分離をかけることにより、電極16を構成する不織布14中にゲル電解質22を含浸させることができる。この場合の遠心分離器の回転速度としては、上記同様500～2000rpmでよく、また遠心分離時間としては5～15分で十分含浸させることができた。

【0018】実施形態2. 図5には、本発明に係るリチウムイオン2次電池の製造方法の実施形態2の説明図が示される。図5において、2つの電極16が、接続部材26により直列接続されている。このような直列接続された2つの電極16を、図1に示された電池缶18に收容し、この電池缶18を図2に示された容器20に立てた状態で入れる。その後、容器20内に、分子量が異なる2種類のポリマーを用いて作成したゲル電解質22を満たし、遠心分離器にかける。

【0019】上記2種類のポリマーとしては、例えば分子量が10万と100万の2種類のPVPDF/HFPの共重合体を用いる。このように、分子量を大きく異ならせれば、2種類のポリマーの粘度が大きく異なるので、結果としてゲル電解質22の粘度も異なることになる。このように、粘度の異なるゲル電解質22を遠心分離器にかけると、分子量が小さく、粘度が低いポリマーからできたゲル電解質22は、電極16を構成する不織布14中を、電池缶18の奥側まで浸透し、図5に示された下側の電極16の不織布14にまで浸透する。他方、分子量の大きいポリマーからできたゲル電解質22は、その粘度が高いため、不織布14中を浸透する速度が遅いので、電池缶18の入口側に位置した電極16即ち図5で示された上側の電極16の不織布14にしか浸透しない。この状態でゲル電解質を固めれば、バイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成することができる。

【0020】なお、この場合の遠心分離器の回転速度としては1000～2000rpmとし、遠心分離時間としては10～20分とした。このような遠心分離器の条

件をさらに最適化すれば、3個以上の電極16を直列に接続したリチウムイオン2次電池も製造が可能である。

【0021】上述した2つの電極16中に含浸されるゲル電解質の上下の電極16での分離をより確実なものとするために、図5に示されるように、プラスチック性等の絶縁板28を電極16間に配置することも好適である。

【0022】このように、2個の電極16を直列接続したバイポーラ型のリチウムイオン2次電池によれば、1個の電極の平均電圧が3.6ボルトであるので、7.2ボルトの電池を実現できる。

【0023】以上述べた実施形態1及び実施形態2の遠心分離器を使用したゲル電解質の含浸方法によってゲル電解質22がどの程度不織布14に浸透したかは、以下の方法で確認した。

【0024】まず、上記各方法で遠心分離にかけた後、N<sub>2</sub>またはAr雰囲気中で電極16を解体し、電解液の蒸発速度を目視で確認した。不織布14中にゲル電解質即ちポリマーと電解液とが混合された状態で浸透している場合には、10分以上濡れた状態が維持されている。これに対して、ポリマーと電解液とが分離し、電解液のみ不織布14に浸透している場合には、約30秒で乾いてしまう。従って、この乾燥時間の相違により不織布14内へのゲル電解質22の浸透状態が確認できる。上記いずれの実施形態の方法によっても、良好なゲル電解質の浸透が確認できた。

【0025】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、正負極間に不織布を介在させ、ここに遠心分離器によりゲル電解質を含浸させるので、正極、負極の短絡の心配のないリチウムイオン2次電池を簡易な工程で製造することができる。

【0026】また、粘度の違うゲル電解質を用い、電極の積層方向に対して垂直方向に遠心分離させれば、容易にバイポーラ型リチウムイオン2次電池を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係るリチウムイオン2次電池の製造方法の実施形態1の説明図である。

【図2】 図1に示された実施形態1において、電池缶を遠心分離器の容器に立てて收容する際の実施形態1の説明図である。

【図3】 ゲル電解質の粘度と最適な遠心分離器の回転速度との関係を示す図である。

【図4】 図1に示された実施形態1において、電池缶を遠心分離器の容器に寝かせた状態で收容する際の実施形態1の説明図である。

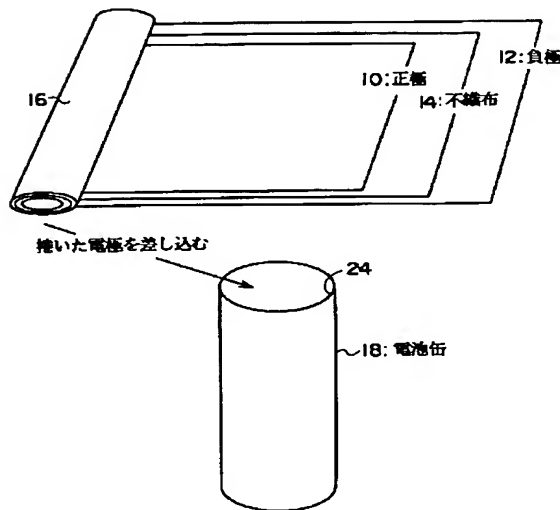
【図5】 本発明に係るリチウムイオン2次電池の製造方法の実施形態2の説明図である。

【符号の説明】

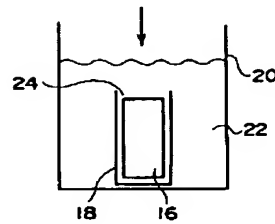
5  
10 正極、12 負極、14 不織布、16 電極、  
18 電池缶、20 容器、22 ゲル電解質、24 開

口、26 接続部材、28 絶縁板。

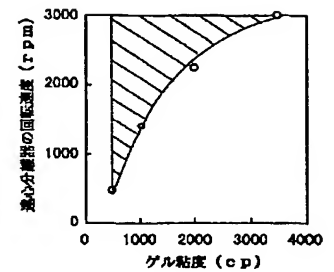
【図 1】



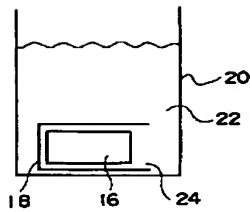
【図 2】



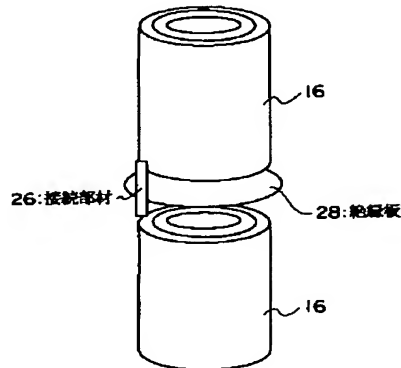
【図 3】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

(72) 発明者 野際 剛  
愛知県豊田市トヨタ町 1 番地 トヨタ自動  
車株式会社内

(72) 発明者 栗野 宏基  
愛知県豊田市トヨタ町 1 番地 トヨタ自動  
車株式会社内

F ターム (参考) 5H029 AJ12 AJ14 AL12 AM00 AM03  
AM04 AM05 AM07 AM16 CJ23  
CJ28 DJ04 DJ11 EJ12 EJ14

## 拒絶理由通知書

特許出願の番号	特願 2002-316039
起案日	平成18年 7月 4日
特許庁審査官	瀧 恭子 3559 4X00
特許出願人代理人	八田 幹雄(外 4名) 様
適用条文	第29条第1項、第29条第2項

この出願は、次の理由によって拒絶をすべきものである。これについて意見があれば、この通知書の発送の日から60日以内に意見書を提出して下さい。

### 理 由

#### 理由1、

この出願の下記の請求項に係る発明は、その出願前に日本国内又は外国において、頒布された下記 of 刊行物に記載された発明又は電気通信回線を通じて公衆に利用可能となった発明であるから、特許法第29条第1項第3号に該当し、特許を受けることができない。

#### 理由2、

この出願の下記の請求項に係る発明は、その出願前日本国内又は外国において頒布された下記 of 刊行物に記載された発明又は電気通信回線を通じて公衆に利用可能となった発明に基いて、その出願前にその発明の属する技術の分野における通常の知識を有する者が容易に発明をすることができたものであるから、特許法第29条第2項の規定により特許を受けることができない。

記 (引用文献等については引用文献等一覧参照)

1, 請求項1及び2(以下、「本願発明1及び2」という。)

#### (1)引用文献1 理由1及び2

引用文献1には、「正極と、負極と、完全固体型電解質等の非流動性の電解質層とからなる単位電池要素が、積層されて構成される電池において、多孔性を有するスペーサの空隙中に電解質が充填されて形成され、正極と負極とを離隔している平板積層型電池。」(【請求項1】、【0021】、【0054】)の発明が記載されている。(以下、「引用文献1発明」という。)

引用文献1発明の「多孔性を有するスペーサ」は、本願同様、正極と負極とを離隔して短絡を防止する機能を有している(【0021】)から、本願発明1の「骨格材」と云える。

引用文献1には、本願発明2の多孔性シートが記載されている。(【0053

】)

(2)引用文献2 理由1及び2

引用文献2には、「正極、負極及び電解質層を有する単位電池要素から構成される電池要素を含む電池において、該電解質層が多孔性膜からなるスペーサーを支持体とし、これに架橋性ポリマーを含む電解質を含浸してなる電池。」(【請求項1】)の発明が記載されている。(以下、「引用文献2発明」という。)

引用文献2発明の「スペーサ」は、正極と負極を一定の間隔に隔てるものであると云えるから、本願発明1の「骨格材」と云える。

引用文献2には、本願発明2の多孔性シートが記載されている。(【0028】)

(3)引用文献3 理由1及び2

引用文献3には、「正極と、負極と、正極活物質層と負極活物質層との間に、この正極活物質層と負極活物質層との距離を制御する球状のスペーサ粒子を含むポリマ固体電解質等からなるイオン伝導層とを備えたことを特徴とする二次電池。」(【請求項1】、【請求項4】、【0029】)の発明が記載されている。(以下、「引用文献3発明」という。)

引用文献3発明の「球状のスペーサ粒子」は、本願発明1の「骨格材」に相当する。

また、引用文献3発明の比較例8には、「正極と、負極と、電極間に、ポリオレフィン系セパレータフィルム(本願発明2の多孔性シートに相当)を挟み込み、ポリマ固体電解質等を電極間に充填したことを特徴とする二次電池。」が記載されている。(【0078】)

2、請求項4(以下、「本願発明4」という。)

引用文献1 理由1及び2

引用文献1発明の「多孔性を有するスペーサ」は、引用文献1の【0053】によれば、多孔性シートの空隙率が10～95%である旨記載されているから、本願発明4の多孔性シートと云える。

3、請求項5及び6(以下、「本願発明5及び6」という。)

引用文献3 理由1及び2

引用文献3の【0025】及び【0026】には、本願発明5及び6の骨格材が記載されている。

4、請求項7(以下、「本願発明7」という。)

引用文献1～3及び4 理由2

例えば、引用文献4にも記載されるように、バイポーラ電極が高分子電解質層を挟んで複数直列に積層してなるポリマー電池は周知であるから、引用文献1～3発明のいずれかにおいて、電極をバイポーラ電極とする程度のことは、当業者

が適宜なし得ることである。

5、請求項8（以下、「本願発明8」という。）

(1)引用文献1 理由1及び2

引用文献1には、本願発明8の正極活物質及び負極活物質が記載されている。

（【0045】、【0046】）

(2)引用文献2 理由1及び2

引用文献2には、本願発明8の正極活物質及び負極活物質が記載されている。

（【0038】、【0039】）

(3)引用文献3 理由1及び2

引用文献2には、本願発明8の正極活物質及び負極活物質が記載されている。

（【0024】）

6、請求項9（以下、「本願発明9」という。）

(1)引用文献3 理由1及び2

引用文献3発明の「ポリマ固体電解質からなるイオン伝導層」は、本願発明9の高分子電解質層に相当する。

(2)引用文献1（又は2） 理由2

ポリマー電池の電解質として、全固体高分子を用いることは周知であるから、引用文献1及び2発明において、電解質を本願発明9の電解質とする程度のことは、当業者が適宜なし得ることである。

7、請求項10（以下、「本願発明10」という。）

引用文献1～3 理由2

ポリマー電池を複数個接続した組電池は周知であるから、引用文献1～3発明のポリマー電池を、複数個接続した組電池とする程度のことは、当業者が適宜なし得ることである。

8、請求項11（以下、「本願発明11」という。）

引用文献1～3 理由2

ポリマー電池、及びポリマー電池の組電池を駆動用電源として搭載する車両は周知であるから、引用文献1～3発明の電池を、駆動用電源として車両に搭載する程度のことは、当業者が適宜なし得ることである。

引用文献等一覧

1. 特開2001-357882号公報
2. 特開2002-184466号公報
3. 特開平11-307124号公報
4. 特開2002-216846号公報



## 先行技術文献調査結果の記録

- ・調査した分野 I P C第7版 H O 1 M 4 / 0 0 - 4 / 6 2、  
1 0 / 3 6 - 1 0 / 4 0
- ・先行技術文献 特開平 1 1 - 3 4 5 6 2 9号公報  
特開平 0 9 - 2 3 7 6 3 9号公報  
特開 2 0 0 2 - 0 1 5 7 7 2号公報  
特開 2 0 0 1 - 1 1 8 6 0 1号公報

この先行技術文献調査結果の記録は、拒絶理由を構成するものではない。

この拒絶理由通知の内容に関するお問い合わせ、または面接のご希望がございましたら下記までご連絡下さい。

特許審査第三部金属電気化学 瀧 恭子

TEL. 03 (3581) 1101 内線3477

FAX. 03 (3501) 0673